

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-220507

(P2002-220507A)

(43)公開日 平成14年8月9日(2002.8.9)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード*(参考)
C 0 8 L 61/04		C 0 8 L 61/04	4 J 0 0 2
C 0 8 K 3/00		C 0 8 K 3/00	
7/14		7/14	
C 0 8 L 101/00		C 0 8 L 101/00	

審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全 4 頁)

(21)出願番号	特願2001-19821(P2001-19821)	(71)出願人	000002141 住友ベークライト株式会社 東京都品川区東品川2丁目5番8号
(22)出願日	平成13年1月29日(2001.1.29)	(72)発明者	谷澤 秀実 東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友 ベークライト株式会社内
		Fターム(参考)	4J002 AC06X AC07X AC09X BF02X BG10X CC03W CP03X DE076 DE146 DF016 DJ006 DJ016 DK006 DL007 FA047 FD016 FD017 FD126 FD127 FD150 GM00 GQ01

(54)【発明の名称】 フェノール樹脂成形材料

(57)【要約】

【課題】 従来のフェノール樹脂に比べ倍以上の熱伝導率を付与するとともに、従来の高熱伝導化手法に見られた電気絶縁性の低下や脆さを防いだフェノール樹脂組成物を提供すること。

【解決手段】 フェノール樹脂とエラストマーを併用し、成形材料全体に対するフェノール樹脂の量をX(重量%)とし、エラストマーの量をY(重量%)としたとき、下記式を満たす割合で配合し、

$$1.0 \leq X < 2.8$$

$$1.5 \leq X + Y \leq 3.0$$

$$0.1 \leq Y/X \leq 2.5$$

ガラス繊維5~30重量%、無機粉末40~75重量%を必須成分として配合することを特徴とするフェノール樹脂成形材料。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 フェノール樹脂とエラストマーを併用し、成形材料全体に対するフェノール樹脂の量をX（重量％）とし、エラストマーの量をY（重量％）としたとき、下記式を満たす割合で配合し、

$$10 \leq X < 28$$

$$15 \leq X + Y \leq 30$$

$$0.1 \leq Y/X \leq 2.5$$

ガラス繊維5～30重量％、無機粉末40～75重量％を必須成分として配合することを特徴とするフェノール樹脂成形材料。

【請求項2】 無機粉末として、ウォラストナイト、熔融シリカ、結晶シリカ、アルミナ、チッ化ケイ素、酸化マグネシウム、チッ化ホウ素、チッ化アルミニウム、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウムの中から1種又は2種以上を併用することを特徴とする請求項1記載のフェノール樹脂成形材料。

【請求項3】 エラストマーとして、酢酸ビニル樹脂、ポリビニルアセテート樹脂、イソブレンゴム、クロロブレンゴム、アクリロニトリルブタジエンゴム、シリコンゴムのうちから1種又は2種以上を併用することを特徴とする請求項1又は2記載のフェノール樹脂成形材料。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、熱伝導性及び機械的強度に優れ、かつ電気絶縁性が良好であり、電気電子部品或いは自動車用部品、汎用機械部品等に好適に用いられるフェノール樹脂成形材料に関するものである。

【0002】

【従来の技術】従来、フェノール樹脂は電気絶縁性が良好であることから、電気部品の絶縁材として用いられてきた。また、優れた耐熱性及び機械的強度、寸法安定性を有することから自動車部品に代表される機構部品に用いられてきた。こうした部品では往々にして発熱、或いは雰囲気からの熱伝播により蓄熱し部品性能を著しく低下させてしまう場合があった。これは従来このような用途に用いられるフェノール樹脂成形材料の熱伝導率が0.3～0.5 W/m・K程度であり放熱効率が低いためであった。

【0003】こうした問題に対し熱伝導率の高い材料が求められるが、このためには従来グラファイトやカーボン繊維といった基材を用いることで材料の熱伝導率を従来の倍以上に向上させていた。しかしながらこれらの基材は、導電性であることから絶縁抵抗を大幅に低下させてしまうため、電気絶縁性を必要とする電気電子部品には適用できなかった。更にこれらは樹脂との界面密着性がよくないため、機械的強度も低下させてしまうため、機構部品等への使用は困難であるという問題があった。また、電気絶縁性を低下させずに熱伝導性を付与するために、シリカ粉末等の熱伝導率の高い無機基材を用いる

場合もあった。しかしながら従来の材料では熱伝導率を上げるためには、これら基材を高配合する必要があったが、無機粉末を高配合した材料は機械的強度が低下し且つ弾性率が高くなるため脆く割れやすくなるといった問題があった。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記に示すような電気絶縁性の低下がなく機械的強度に優れ、且つ脆くない熱伝導性の高いフェノール樹脂組成物を提供するものである。

【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者は、上記の点について鋭意検討を行った結果、フェノール樹脂、エラストマー、ガラス繊維、及び無機粉末を特定量含むことで電気絶縁性を損なうことなく、高い熱伝導率を有し機械的強度に優れたフェノール樹脂成形材料が得られることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0006】本発明は、（1）フェノール樹脂とエラストマーを併用し、成形材料全体に対するフェノール樹脂の量をX（重量％）とし、エラストマーの量をY（重量％）としたとき、下記式を満たす割合で配合し、

$$10 \leq X < 28$$

$$15 \leq X + Y \leq 30$$

$$0.1 \leq Y/X \leq 2.5$$

ガラス繊維5～30重量％、無機粉末40～75重量％を必須成分として配合することを特徴とするフェノール樹脂成形材料、（2）無機粉末として、ウォラストナイト、熔融シリカ、結晶シリカ、アルミナ、チッ化ケイ素、酸化マグネシウム、チッ化ホウ素、チッ化アルミニウム、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウムの中から1種又は2種以上を併用することを特徴とする第

（1）項記載のフェノール樹脂成形材料、（3）エラストマーとして、酢酸ビニル樹脂、ポリビニルアセテート樹脂、イソブレンゴム、クロロブレンゴム、アクリロニトリルブタジエンゴム、シリコンゴムのうちから1種又は2種以上を併用することを特徴とする第（1）又は（2）項記載のフェノール樹脂成形材料、である。

【0007】

【発明の実施の形態】本発明で用いるフェノール樹脂は、ノボラック型フェノール樹脂（以下、ノボラック樹脂という）或いはレゾール型フェノール樹脂（以下、レゾール樹脂という）を単独或いは併用して用いる。ノボラック樹脂単独で用いる場合は、硬化剤としてヘキサメチレンテトラミンを、通常の場合と同様に、ノボラック樹脂に対し10～20重量％用いる。またノボラック樹脂とレゾール樹脂を併用する場合は、ヘキサメチレンテトラミンを用いなくてもよい場合がある。フェノール樹脂は、成形材料全体に対して10重量％以上、28重量％未満である。フェノール樹脂が10重量％未満であると、成形材料の製造が困難となることと、材料の流動性

が著しく低下するため成形が困難になるといった問題が生じるようになる。28重量%以上であるとエラストマーの併用比率がフェノール樹脂に対し10重量%を下回るため靱性が十分に得られにくい。成形性と機械的強度等を考慮すれば、好ましくは10~20重量%である。

【0008】本発明において用いられるエラストマーは、酢酸ビニル樹脂、ポリビニルアセテート樹脂、イソブレンゴム、クロロブレンゴム、アクリロニトリルブタジエンゴム、シリコンゴムの中から選ばれた1種又は2種以上を用いる。後述するように、本発明は、ガラス繊維及び無機粉末が高配合されている。従って、樹脂含有量が減ることにより弾性率が高く引っ張り伸び率が低下する。前記エラストマーは、これに伴い成形品の脆さを改善する効果を付与するために配合される。すなわちこれらを所定量配合することで、弾性率が低減でき、靱性が得られることから優れた耐脆性を持ち且つ機械的強度も良好な成形品を得ることが可能となる。

【0009】本発明では、フェノール樹脂とエラストマーは併用して用いるが、その併用物は成形材料全体に対し15~30重量%配合される。15重量%未満では、材料の生産が困難であるのと同時に成形においても流動性が得られず成形困難であり成形品を得ることが出来ないため好ましくない。30重量%を超えると基材間の樹脂とエラストマーによる有機層が厚くなり断熱作用が高まるため熱伝導率が向上しないため好ましくない。成形性と弾性率の低減等を考慮すれば、好ましくは17~25重量%である。

【0010】更に本発明において併用されるエラストマーは、フェノール樹脂に対し10~250重量%配合される。エラストマーが配合されることで成形品に靱性が付与されるため、基材を高配合することによる弾性率の上昇及び機械的強度の低下を抑制される。但しエラストマーがフェノール樹脂に対し10重量%未満では、靱性付与の効果が十分に得られず引っ張り伸び率の向上が小さいため成形品が脆くなることがある。フェノール樹脂に対し250重量%を超えると弾性率が低下しすぎ引っ張り伸び率は大きくなるものの成形品が変形しやすくなり、機械的強度が低下する。弾性率の低減や機械的強度等を考慮すれば、好ましくは30~150重量%である。

【0011】本発明には基材としてガラス繊維と無機粉末を用いる。ガラス繊維は、機械的強度を向上させるために成形材料全体に対し5~30重量%配合される。5重量%未満では、強度向上が十分に得られない。30重量%を超える量では、機械的強度は向上するがガラス繊維自身の熱伝導率が、併用される無機粉末に比べ小さいため熱伝導率の向上が阻害されるようになる。さらに機械的強度や熱伝導率等を考慮すれば、好ましくは10~20重量%である。また本発明で用いられるガラス繊維

は、平均繊維径が6~20 μ mで平均繊維長が1~6mmのチョップドストランドであり、通常のフェノール樹脂成形材料に用いられるものである。

【0012】無機粉末は、平均粒径が0.1~100 μ mのものを用いる。使用される無機粉末は、ウォラストナイト、熔融シリカ、結晶シリカ、アルミナ、チッ化ケイ素、酸化マグネシウム、チッ化ホウ素、チッ化アルミニウム、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウムの中から選ばれた1種又は2種以上を用いる。これら無機粉末は、熱伝導率が高く高配合することで高い熱伝導率の成形材料を得ることが出来る。但し、75重量%を超えると材料の製造が困難となり、また成形も著しく困難となることから成形品が得られないため好ましくない。また40重量%未満では、無機粉末の効果が十分に得られず熱伝導率の向上が小さい。従って、無機粉末は成形材料全体に対し40~75重量%配合される。さらに熱伝導率等を考慮すれば、好ましくは55~75重量%である。

【0013】本発明のフェノール樹脂成形材料を製造する方法は、通常の方法が採用される。即ち、上記の配合物を所定の配合割合で混合し、更に着色剤、離型剤、硬化触媒、更に必要に応じ着色剤を加え加熱ロールにより混練し、シート状にしたものを顆粒状に粉碎して得られる。

【0014】

【実施例】以下、実施例により本発明を説明する。表1に実施例及び比較例の成形材料組成について示した。また、表2に各実施例及び比較例の特性評価結果を示した。

【0015】本実施例及び比較例に用いた各配合物は以下の通りである。

レゾール樹脂：住友デュレズ社製PR-51501B
ノボラック樹脂：住友デュレズ社製PR-50716
ヘキサメチレンテトラミン：住友精化社製ウロトロピン
ガラス繊維：日本板硝子社製チョップドストランドRES

グラファイト：平均粒径40 μ mの土状黒鉛

ウォラストナイト：平均粒径10 μ m

結晶シリカ：平均粒径1 μ m

チッ化ホウ素：平均粒径20 μ m

NBR：JSR PNC-38

ポリビニルブチラール：積水化学社製エスレック

着色剤：カーボンブラック

離型剤：ステアリン酸

硬化触媒：消石灰。

【0016】これらを表1に示す割合で配合し、加熱ロール間で混練し、次いで、シート状にし冷却したものを粉碎して顆粒状の成形材料とした。

【表1】

配 合 (重量%)	実施例					比較例				
	1	2	3	4	5	1	2	3	4	5
レゾール樹脂	15	—	10	10	10	—	30	20	20	—
ノボラック樹脂	—	15	—	—	—	15	—	—	—	35
ポリオキシエチレン	—	2	—	—	—	2	—	—	—	5
ガラス繊維	15	10	15	10	5	40	10	15	20	50
グラファイト	—	—	—	—	—	—	—	—	50	—
ウラストナイト	60	60	80	—	50	—	—	60	—	—
結晶シリカ	—	—	—	65	—	30	30	—	—	—
チッ化ホウ素	—	—	—	—	20	—	20	—	—	—
NBR	5	8	—	—	—	8	5	—	5	5
ポリビニルピクリル	—	—	10	10	10	—	—	—	—	—
着色剤、顔料、硬化剤	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5

【0017】特性を測定するための試験片は、得られた成形材料を用いて、移送成形により作成した。成形条件は、金型温度175℃、硬化時間3分とした。成形品による評価結果を表2に示した。表2における各特性は機械的強度として引張り強さ、引張り弾性率及び引張り伸び率を評価した。これらは、JIS K 6911「熱*

*硬化性プラスチック一般試験方法」により評価を行った。また熱伝導率は、レーザーフラッシュ法にて測定を行った。絶縁抵抗は、JIS K 6911「熱硬化性プラスチック一般試験方法」により評価を行った。

【0018】

【表2】

項 目	実施例					比較例				
	1	2	3	4	5	1	2	3	4	5
引 張 り 強 さ (MPa)	65	60	75	68	63	80	57	68	47	81
引張り弾性率(GPa)	18.0	17.2	17.5	17.0	17.2	18.5	14.6	20.5	12.5	15.5
引張り伸び率(%)	0.62	0.63	0.8	0.74	0.69	0.65	0.60	0.30	0.31	0.80
熱 伝 導 率 (W/m・K)	0.85	0.93	0.92	1.30	1.50	0.50	0.57	0.95	2.85	0.44
絶縁抵抗(ohm)	1E18	1E18	5E12	4E12	1E12	1E18	7E12	4E12	1E5>	2E12

【0019】実施例1～5は、比較例5に示される無機基材として高強度化のためにガラス繊維だけを配合した場合に比べ熱伝導率が向上していることがわかる。また、従来法であるグラファイトを配合した比較例4に比較すると絶縁抵抗値が高く、他の比較例と比べてもその値は大差がないことがわかる。更に無機粉末量が所定量よりも少ない比較例1や樹脂量が所定量より多い比較例2に比べて熱伝導率が向上した材料であることがわかる。エラストマーを配合しない比較例3と比較すると、弾性率は低減され、引張り伸び率も大きく向上してい

て、脆さが改善された材料であることがわかる。

【0020】

【発明の効果】以上の実施例及び比較例により得られた結果から明らかなように、本発明のフェノール樹脂成形材料は、従来のフェノール樹脂成形材料に比べ熱伝導率が向上しており、且つ電気絶縁性を損なうことなく耐脆性、機械的強度の良好な成形材料となっている。このため、電気電子部品、自動車用部品、汎用機械部品等の放熱を必要とし且つ電気絶縁性や機械的強度の必要な部品に好適に使用される。